

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 63-258958
(43)Date of publication of application : 26.10.1988

(51)Int.Cl.

C09C 3/12
C09C 3/08
C09C 3/08
C09C 3/12

(21)Application number : 62-094149
(22)Date of filing : 16.04.1987

(71)Applicant : TOYOBO CO LTD
(72)Inventor : MATSUYAMA YUJIRO
MURASHIGE RYUICHI
KUZE KATSURO
NAKAMURA KOICHIRO
MAKIMURA OSAMU

(54) METHOD FOR TREATING SURFACE OF INERT INORGANIC PARTICLE

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain inorganic particles, having improved compatibility with resins and useful for blending in the resins without impairing transparency, etc., of molded products, by initially treating the surface with hydrolyzates of a specific silane compound and titanium compound and then with a hydrolyzate of a specific silane compound.

CONSTITUTION: Hydrolyzates of a silane compound expressed by formula I (R1 is 1W10C monofunctional organic residue) (e.g. tetramethoxysilane) and a titanium compound expressed by formula II (R2 is 1W8C monofunctional organic residue) are applied to surfaces of inert inorganic particles, such as calcium carbonate or barium sulfate, and the resultant particles are then treated at, e.g. 100W150° C for 1W3hr. A hydrolyzate of a silane compound expressed by formula III (p+q+r=4, q≥2; r≥1; p=1 or 0; R3 and R4 are monofunctional organic residue; R5 is monofunctional organic residue substituted by functional group) (e.g. α -glycidoxypropyldiethoxymethylsilane) is subsequently applied so as to provide 1W10wt.% total amount of added silane compounds. Thereby the aimed particles are obtained.

$\text{Si}(\text{OR}^1)_4$

$\text{Ti}(\text{OR}^2)_4$

$\text{Si}(\text{OR}^3)_p(\text{OR}^4)_q(\text{OR}^5)_r$

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]
[Date of sending the examiner's decision of rejection]
[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]
[Date of final disposal for application]
[Patent number]
[Date of registration]
[Number of appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of extinction of right]

⑫ 公開特許公報(A)

昭63-258958

⑬ Int.Cl.⁴C 09 C 3/12
3/08

識別記号

CME
CMC
PBU

庁内整理番号

B-6770-4J ※審査請求 未請求 発明の数 1 (全8頁)

⑭ 公開 昭和63年(1988)10月26日

⑮ 発明の名称 不活性無機粒子の表面処理方法

⑯ 特 願 昭62-94149

⑰ 出 願 昭62(1987)4月16日

⑱ 発 明 者 松 山 雄 二 郎 福井県敦賀市東洋町10番24号 東洋紡績株式会社総合研究所敦賀分室内

⑲ 発 明 者 村 重 隆 一 福井県敦賀市東洋町10番24号 東洋紡績株式会社総合研究所敦賀分室内

⑲ 発 明 者 久 世 勝 朗 福井県敦賀市東洋町10番24号 東洋紡績株式会社総合研究所敦賀分室内

⑲ 発 明 者 中 村 鋼 一 郎 福井県敦賀市東洋町10番24号 東洋紡績株式会社総合研究所敦賀分室内

⑳ 出 願 人 東洋紡績株式会社 大阪府大阪市北区堂島浜2丁目2番8号

㉑ 代 理 人 弁理士 植 木 久 一 外1名

最終頁に続く

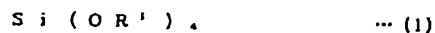
明 細 書

1. 発明の名称

不活性無機粒子の表面処理方法

2. 特許請求の範囲

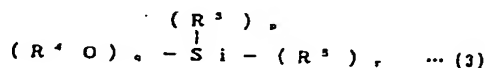
合成樹脂に配合剤として配合される不活性無機粒子の表面を処理する方法において、該不活性無機粒子に下記(1)式で示されるシラン化合物の加水分解物および下記(2)式で示されるチタン化合物の加水分解物を添加して該粒子の表面を処理した後、下記(3)式で示されるシラン化合物の加水分解物を添加して表面処理をし、且つ不活性無機粒子100重量部に対するシラン化合物(1)～(3)の総添加量を1～10重量部とすることを特徴とする不活性無機粒子の表面処理方法。



(式中R¹は炭素数1～10の1価の有機残基を示す)



(式中R²は炭素数1～8の1価の有機残基を示す)



(式中p、q、rは、p+q+r=4、q≥2、r≥1、p=1又は0を満足する整数であり、R³、R⁴は1価の有機残基、R³は少なくとも1個以上の官能基で置換された1価の有機残基を示す)

3. 発明の詳細な説明

〔産業上の利用分野〕

本発明は合成樹脂に配合剤として配合される不活性無機粒子の表面処理方法に関し、殊に合成樹脂との親和性を改善する為に行なわれる不活性無機粒子の表面処理方法に関するものである。

〔従来の技術〕

合成樹脂等の高分子材料に配合剤として無機粒子を配合することは既に良く知られているが、このとき無機粒子の配合による強化効果を有効に発揮させるうえで高分子材料との親和性を改善することは極めて重要であり、こうした観点から無機粒子に対する表面改質処理法が色々実施されてい

る。

表面処理方法のうち最も汎用されているものの1つとして、無機粒子の表面を有機化合物でコーティングする方法がある。この方法で無機粒子の表面をコーティングする場合、無機粒子表面に対する有機化合物の接着性が重要な要件となってくる。例えばシリカ系粒子の様に有機官能基(例えば水酸基)を有する無機粒子の場合は、粒子表面の該官能基と反応し得る置換分を有する化合物、例えばシランカップリング剤を使用することによって強固なコーティング層を容易に形成することができ、無機粒子における有機高分子材料との親和性を改善することができるのである。

[発明が解決しようとする問題点]

上述したシランカップリング剤は、対象とする無機粒子が官能基を有する場合には表面改質剤として非常に有効であるが、例えば炭酸カルシウムや硫酸バリウムの様に表面に官能基を有していない不活性無機粒子に対しては全く効果がない。

この様な不活性無機粒子についての有効な処理

料に対する不活性無機粒子の親和性を改善すべく、該不活性無機粒子とカップリング剤との接着性を高め、延伸等の後加工においても表面処理による改質効果を維持し得る様な表面処理方法を提供することにある。

[問題点を解決するための手段]

上記目的を達成し得た本発明処理方法の構成は、合成樹脂に強化剤として配合される不活性無機粒子の表面を処理する方法において、該不活性無機粒子に下記(1)式で示されるシラン化合物の加水分解物および下記(2)式で示されるチタン化合物の加水分解物を添加して粒子の表面を処理した後、下記(3)式で示されるシラン化合物の加水分解物を添加して表面処理をし、且つ不活性無機粒子100重量部に対するシラン化合物(1)、(3)の総添加量を1~10重量部とする点に要旨を有するものである。



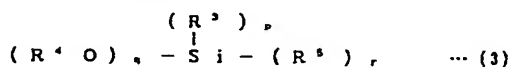
(式中 R^1 は炭素数1~10の1価の有機残基を示す)

方法はあまり知られておらず、わずかに物理的吸着や沈着を応用した改質法が知られている程度であり、しかもこれらの方法には後述する如く種々の欠点がある。例えば「ポリマーダイジェスト」(第8巻、1984年、第27頁~35頁)にはチタネート系カップリング剤、燐酸系カップリング剤又は非イオン系界面活性剤等による表面改質法が開示されている。しかしながらこれらの方法で改質された不活性無機粒子を高分子材料に配合したとしても、無機粒子とカップリング剤との接着強度が不十分であり、後に行なわれる加工工程例えば延伸工程の際に加えられる外力に抗しきれず、せっかく表面処理をしたのにその効果が十分に発揮されない。特にこの様にして得られた無機粒子含有高分子材料を配向フィルムとして使用した場合には、未延伸シートを一軸若しくは二軸方向に延伸する過程で粒子の周辺にボイド(気泡)が生じ、透明性が低下するという問題が生じる。

本発明は上述した様な問題に鑑みてなされたものであって、その目的とするところは、高分子材



(式中 R^2 は炭素数1~8の1価の有機残基を示す)



(式中 p 、 q 、 r は、 $p+q+r=4$ 、 $q \geq 2$ 、 $r \geq 1$ 、 $p=1$ 又は 0 を満足する整数であり、 R^3 、 R^4 は1価の有機残基、 R^5 は少なくとも1個以上の官能基で置換された1価の有機残基を示す)

[作用]

本発明は上述の如く構成されるが、要は不活性無機粒子の処理に際し、まず特定のシラン化合物(1)とチタン化合物(2)とを上記無機粒子中に特定量配合して処理することにより、不活性無機粒子の表面にシラン化合物(1)とチタン化合物(2)の混合物からなる層を強固に付着させ、次いでシラン化合物(1)とは作用の異なるシラン化合物(3)を特定量添加して処理することにより不活性

無機粒子の表面最外層にシラン化合物(3)からなる層を生ぜしめ、これにより合成樹脂との親和性を高め、先に指摘した従来の問題点を悉く解消し得たものである。

本発明の処理対象となる不活性無機粒子に関しては何ら限定されるものではなく、例えば炭酸カルシウム、硫酸バリウム、酸化チタン、酸化珪素、カオリナイト等を挙げることができるが、本発明の効果が最も顕著に発揮されるのは粒子表面に官能基を有しない炭酸カルシウム及び硫酸バリウムである。また上記粒子の概念は広く解釈すべきものであり、ウイスキー等の短繊維も包含する。

本発明においては、上述した如く不活性無機粒子にまずシラン化合物(1)とチタン化合物(2)を配合して処理した後、更にシラン化合物(3)を添加して表面改質処理を行なうものであるが、これら各化合物の作用を説明すると下記の通りである。

まず第1段目の処理で用いるシラン化合物(1)

えるものを用いると、シラノール基を生じさせる為の加水分解反応を行なう際に、水に対して十分な溶解度が得られず、操作上種々の障害が現れてくる。

またシラン化合物(1)と共に使用されるチタン化合物(2)は、ポリシロキサンネットワークの珪素原子をチタン原子で置換せしめ、無機粒子表面により強固な物理的吸着力を生じさせるうえで不可欠の成分である。こうした作用はポリシロキサンネットワークの一部に導入されたチタンがアンカー的な役割を果たすためと考えられる。従ってチタン化合物の構造としては、シラノール基と反応し得るチタノール基を数多く形成し得るものが好ましい。

こうした要求を満たす化合物としては、テトラアルコキシチタンが挙げられ、好ましいアルキル基はメチル、エチル、プロピル、ブチル等である。中でもプロピル又はブチルであるものは取扱性の点で最適である。該有機残基は炭素数が1〜8であることが必要であり、炭素数が8を超え

は、水酸基等の官能基を持たない不活性無機粒子を、ポリシロキサン結合を主成分とするネットワーク構造(網状構造)で強固に被覆する目的で用いられるものである。従ってこの段階で添加されるシラン化合物(1)は、ポリシロキサン結合を形成する前駆構造物であるシラノール基を数多く且つ容易に形成し得る構造であることが必要である。こうした要求を満たし得るシラン化合物(1)としては、前記(1)式において R^1 がアルキル基であるテトラアルコキシシランが最適である。アルキル基としてはメチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、ヘキシル、ヘプチル、オクチル、ノニル、シクロヘキシル等の直鎖若しくは分岐状或は環状の炭化水素残基が例示される。その他の有機残基についても特段の制限はないが、中でも最も実用性の高いのは、市販品として容易且つ安価に入手できるメチル基、エチル基からなるものである。

尚これらの有機残基はいずれも炭素数が1〜10であることが必要であり、炭素数が10を超

る場合は、チタノール基生成のための加水分解反応を行なう際に、水に対して十分な溶解度が得られずやはり操作上の問題が生じてくる。

次に第2段目の改質処理で使用されるシラン化合物(3)は、前記第1段目の処理で不活性無機粒子の表面に形成したシラン化合物(1)の加水分解物からなる被覆層上に更に被覆して合成樹脂との親和性を改善する為のものである。従ってこのシラン化合物(3)は、前記ネットワーク構造に残存しているシラノール基と反応させる為のシラノール基を生成し得る1価の有機残基と、合成樹脂との親和性を改善するのに有効な官能基を少なくとも1個含有する1価の有機残基とを、夫々1個以上有していることが必要である。こうした要求を満たし得るシラン化合物は、前記(3)式の様に表わすことができる。ここで合成樹脂との親和性の改善に有効な官能基、即ち前記(3)式中の1価の有機残基(R^4)における官能基としては、対象とする合成樹脂の種類によっても異なるので一律に規定するのは適当でないが、例えばポリエステル

やナイロン等の様な極性高分子を対象とする場合は、水酸基、メルカプト基、エポキシ基、アミノ基、アミド基、カルボキシ基、イソシアネート基、ビニル基、アクリル基、メタクリル基、ハライド等が好ましいものとして挙げられる。尚p, q, rで示される上記定義における有機残基の種類も特に限定されないが、代表的なものとしては、メチル、エチル、プロピル等の炭化水素基が挙げられる。

本発明において、不活性無機粒子と前記シラン化合物(1)とチタン化合物(2)およびシラン化合物(3)とを用いた改質反応の具体的操作法についても特段の制限はなく、従来から行なわれている方法或はその改良方法に従えばよい。例えば不活性無機粒子にシラン化合物(1)とチタン化合物(2)およびシラン化合物(3)を直接噴霧する方法、或は水やメタノール等の溶剤を用いて不活性無機粒子をスラリー化した後シラン化合物(1)とチタン化合物(2)およびシラン化合物(3)を添加する方法等が挙げられる。いずれの方法を採用す

更に好ましいのは2~6重量部程度である。これは、シラン化合物の総添加量が1重量部未満では、無機粒子表面に導入される官能基の量が不足し、合成樹脂と不活性無機粒子との親和性を改善するには不十分だからである。但しこうしたシラン化合物の表面改質効果は総添加量10重量部で飽和し、それ以上添加してもそれ以上の改質効果は得られず、経済的な不利益をまわくだけである。尚シラン化合物の添加における最も好ましい実施形態は、第1段目で添加するシラン化合物(1)及び第2段目で添加するシラン化合物(3)の両方共1重量部以上添加することである。

第1段目の改質工程でシラン化合物(1)とともに用いられるチタン化合物の添加量は、シラン化合物(1)100重量部に対し5重量部以上30重量部以下が好ましい。添加量が5重量部未満では、ポリシロキサンネットワークに対するアンカー作用が十分に発揮されず、一方30重量部を超えてもアンカー効果はそれ以上向上しないので不経済であるばかりでなく、チタン化合物同士が

るにしても、縮合反応によって生じる水やエタノールを蒸発除去できる反応時間や反応温度を決定することが推奨される。しかしながら第1段目の反応においては、ポリシロキサン結合を形成させる必要がある為、第2段目の反応と比較して厳しい反応条件を採用する必要がある。例えば100~150℃で1~3時間程度の加熱が推奨される。これに対し第2段目の反応は容易に進行するので、第1段目の反応ほど厳しい反応条件は要求されない。尚第2段目の反応においても、その反応を確実に完結させるうえで第1段目と同程度の厳しい反応条件を採用することは有効であり、特に無機粒子の凝集を発生させない限り何ら支障を来すものではない。

一方、不活性無機粒子に対するシラン化合物(1)、(2)の総添加量は、不活性無機粒子の粒径によっても異なるが、強化剤として通常用いられている無機粒子の平均粒径が0.2~3.0 μm 程度であることを考慮すると、不活性無機粒子100重量部に対し1~10重量部とする必要がある。

縮合反応を起こしてゲル状の化合物を生じることもあるので好ましくない。

本発明方法は以上の様に構成されており、その最大の特徴点はシラン化合物およびチタン化合物を用いて2段階で無機粒子表面の改質処理を行なうところにあるが、対象とする合成樹脂の種類、該合成樹脂に対する無機粒子の添加量、合成樹脂の加工法、最終製品の用途等によっては、1段目の表面処理のみを行なった不活性無機粒子を強化剤として用いることもできる。即ち合成樹脂の種類が異なれば無機粒子表面と合成樹脂との親和性に対する要求度合いも異なってくるので、経済性或はプロセス簡略化等の面を考慮して1段目の表面処理のみを採用した方が有利な場合もあり得る。しかしながら第1段目の表面処理のみによって得られる無機粒子の表面には、水酸基又はアルコキシ基等が存在するだけであるので、合成樹脂との親和性を改善するという趣旨からすると不十分な場合が多い。結局のところ本発明方法によれば、対象とする合成樹脂の構造や官能基の種類等

を考慮して、シラン化合物(3)における最適の官能基を選択することにより、所期の目的を達成することができるので、その技術的応用は極めて広い範囲に亘り大きな技術的価値を有するものである。

以下合成樹脂としてポリエステルを使用する場合について、実施例によって本発明を更に詳細に説明する。

【実施例】

実施例で採用した測定法は下記の通りである。

(I) 不活性無機粒子の粒径

不活性無機粒子をエチレングリコール中に十分に分散させ、該スラリー中における粒度分布を、光透過型遠心沈降式粒度分布測定機(SA-C P 3型 島津製作所製)を用いて測定し、その積算50%の値を用いた。

(II) 合成樹脂製フィルム中のボイド観察

合成樹脂製フィルムをアルカリでエッチング処理し、表層ポリマーを除去して無機粒子を露出さ

このスラリーに、テトラメトキシシランの加水分解物をシラン化合物換算で炭酸カルシウム100重量部に対して2.0重量部の割合で添加した。該スラリーにテトラブトキシチタンを炭酸カルシウムに対して0.4重量部添加し、このスラリー状混合物を15分間攪拌した後、ロータリーエバポレーターでメタノールを留去する。得られた粉末に140℃で2.5時間の熱処理を施して第1段目の表面処理を終えた。

こうして第1段目の表面処理を施した炭酸カルシウムをメタノールに再び分散し、γ-グリシドキシプロピルジエトキシメチルシランの加水分解物をシラン化合物換算で第1段目処理前の炭酸カルシウム100重量部に対し2.5重量部の割合で添加し攪拌した。

得られた表面処理済み炭酸カルシウムをエチレングリコール中に十分に分散し、該スラリー中における平均粒径及び粒径分布を調べたところ、処理前の炭酸カルシウムとほぼ同様であり、明確な凝集粒子は観察されなかった。

せた後、走査型電子顕微鏡で観察してボイドの有無を判定した。

(III) フィルムの透明性

J I S K 6714に準拠して測定した。

(IV) フィルム表面の耐摩耗性

走査型電子顕微鏡を用いて1000倍率で7mm×7mmのフィルム表面をくまなく観察し、破裂ボイドが認められた部位を更に5000倍に拡大して写真撮影した。撮影した破裂ボイドについて、その長径が5μm以上のものの個数を調べ、下記5段階に分けて評価した。

5級	全く認められず
4級	0～10個
3級	11～20個
2級	21～30個
1級	31個以上

実施例1

(1) 無機粒子の表面処理

平均粒径0.8μmの炭酸カルシウム粉末50重量部をメタノール250重量部中に分散せしめ、

(2) スラリーの調製法

本発明方法に従って表面処理を施した炭酸カルシウム5重量部を、トリポリ磷酸ナトリウム(TPA)の100g/ℓ水溶液0.64重量部と共に、エチレングリコール(EG)100重量部中に混合し、高圧式均質分散機(H-20型 三和機械製)に供給して分散処理を行なった。

(3) ポリエステルの製造

攪拌装置、分縮器、原料仕込口および生成物取出口を設けた2段の完全混合槽よりなる連続エステル化反応装置を用い、その第1エステル化反応缶のエステル化反応生成物が存在する系へ、TPAに対するEGのモル比が1.7であり、かつ三酸化アンチモンをアンチモン原子換算でTPA単位当り289ppm含有するTPAのEGスラリーを連続的に供給した。

同時にTPAのEGスラリー供給口とは別の供給口より、酢酸マグネシウム四水塩のEG溶液を、反応缶内を通過する反応生成物中のポリエステル単位ユニット当りMg原子換算で100ppm

となるように連続的に供給し、常圧下に平均滞留時間4.5時間、温度255℃で反応させた。

反応生成物を連続的に系外に取り出して第2エステル化反応缶に供給した。第2エステル化反応缶内を通過する反応生成物中のポリエステル単位ユニットに対して、EG:0.5重量部、トリメチルホスフェートのEG溶液:P原子換算で64ppmおよび上記(1)で調製した炭酸カルシウムのEGスラリー:炭酸カルシウムとして2500ppm、をそれぞれ別個の供給口より連続的に供給し、常圧にて平均滞留時間5.0時間、温度260℃で反応させた。第1エステル化反応缶の反応生成物のエステル化率は70%であり、第2エステル化反応缶の反応生成物のエステル化率は98%であった。

該エステル化反応生成物を攪拌装置、分縮器、原料仕込口および生成物取り出し口を設けた2段の連続重縮合反応装置に連続的に供給して重縮合を行ない、固有粘度0.620のポリエステルを得た。

比較例1

表面処理を全く施さない炭酸カルシウム(平均粒径0.8 μ m)を用い、それ以外は実施例1と同様にしてポリエステルフィルムを製造した。得られたフィルムについてボイドと透明性および破裂ボイドを観察したところ、原料段階における炭酸カルシウムの粒子径の2~3倍もの大きさのボイドが多数存在することが確認され、またフィルムヘイズは13.3%、破裂ボイドランクは1級と極めて悪く、合成樹脂と炭酸カルシウムの親和性は劣悪であった。

比較例2

第1段目の改質を省略し第2段目の表面処理のみを施した炭酸カルシウム(平均粒径0.8 μ m)を用い、それ以外は実施例1と同様にしてポリエステルフィルムを製造した。得られたフィルムについてボイドと透明性および破裂ボイドを観察したところ、炭酸カルシウムの周辺に炭酸カルシウムの粒子径の約2倍の大きさのボイドが少数確認され、またフィルムヘイズは10.5%、破裂ボイド

得られたポリエステルの290℃で溶融押出した後、90℃で縦方向及び130℃で横方向に夫々3.5倍延伸し、更に220℃で熱処理して12 μ mのフィルムを得た。

得られたフィルムのボイドと透明性を観察したところ、炭酸カルシウムの周辺にわずかにボイドが観察されるのみであり、又透明性に関してもフィルムヘイズが4.8%と良好な値を示し、ポリエステルと炭酸カルシウムの親和性は著しく改善されていた。さらに破裂ボイドの評価も4級にランクされ十分に満足し得るものであった。

実施例2

第2段目の改質に使用されるシラン化合物(3)としてγ-ジエトキシメチルシリルプロピルイソシアナートを用いた以外は実施例1と同様にして、12 μ mのフィルムを得た。得られたフィルムのボイドと透明性および破裂ボイドを観察したところ、ボイドの量は極めて少なく、フィルムヘイズは5.2%、破裂ボイドランクは4級と良好な結果が得られた。

ランクは2級であった。

即ち第2段目の表面処理のみでは、炭酸カルシウムの親和性改善法として不十分であることがわかる。

比較例3

第1段目の表面処理のみを施した炭酸カルシウム(平均粒径0.8 μ m)を用い、それ以外は実施例1と同様にしてポリエステルフィルムを製造した。得られたフィルムについてボイドと透明性および破裂ボイドを観察したところ、炭酸カルシウムの周辺に炭酸カルシウムの粒子径の約1.5~2倍の大きさのボイドが少数確認され、またフィルムヘイズは9.3%、破裂ボイドランクは3級であった。即ち第1段目の表面処理のみで炭酸カルシウムに十分な親和性を付与することはできないことがわかる。

〔発明の効果〕

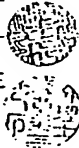
以上述べた如く本発明方法によれば、2段階に分けてシラン化合物およびチタン化合物を添加して不活性無機粒子の表面を処理することにより、

不活性無機粒子の合成樹脂に対する親和性を著しく改善することができ、この改質粒子を強化剤として使用することによって、無機粒子含有合成樹脂に延伸加工を施したときにおけるボイド発生を激減すると共に、フィルムの透明性や耐摩耗性を著しく改善し得ることになった。

出願人 東洋紡績株式会社

代理人 弁理士 植木久一

代理人 弁理士 浅草栄三



第1頁の続き

⑤Int.Cl.⁴

C 09 C 3/12

識別記号

P C H

庁内整理番号

A-6770-4J

⑥発明者 牧 村

修

福井県敦賀市東洋町10番24号 東洋紡績株式会社総合研究所敦賀分室内

手続補正書(自発)

正誤表

昭和63年 6月28日

特許庁長官 吉田 文 毅 殿

1. 事件の表示

昭和62年特許願第94149号

2. 発明の名称

不活性無機粒子の表面処理方法

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

大阪市北区堂島浜二丁目2番8号

(316) 東洋紡績株式会社

代表者 瀧 澤 三 郎

4. 代理人 〒530

大阪市北区堂島2丁目3番7号

シンコービル

電話 大阪(06) 343-2325(代)

(7540) 弁理士 植 木 久

同 所

(8239) 弁理士 浅 草 栄

5. 補正の対象

明細書の「発明の詳細な説明」の欄

6. 補正の内容

別紙「正誤表」の通り訂正します。

頁	行	誤	正
3	9	置換分	置換基
13	6	10重量	10重量部
17	15	攪拌した。	攪拌した後、ロータリーエバポレーターによりメタノールを留去した。得られた粉末に120℃で1時間の熱処理を施して2段階処理を完了した。
18	4	(TPA)の	の
	13	TPA	TPA(テレフタル酸)

